

EUROPEAN PATENT OFFICE

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 10029966
PUBLICATION DATE : 03-02-98

APPLICATION DATE : 17-07-96
APPLICATION NUMBER : 08187796

APPLICANT : MITSUBISHI CHEM CORP;

INVENTOR : IKEDA OSAMU;

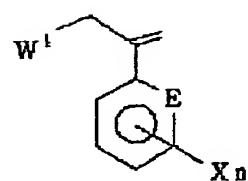
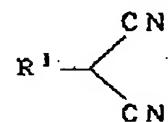
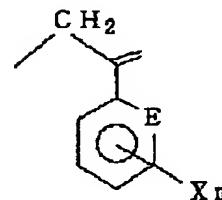
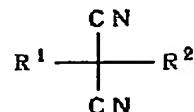
INT.CL. : C07C255/34 A01N 37/34 A01N 43/20
A01N 43/40 C07C255/35 C07C255/37
C07C255/40 C07C255/41 C07C255/44
C07D213/61

TITLE : MALONONITRILE DERIVATIVE AND
HERBICIDE CONTAINING THE
DERIVATIVE AS ACTIVE COMPONENT

ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a new compound having excellent herbicidal activity.

SOLUTION: This compound is expressed by the formula I [R^1 is H, a 1-6C alkyl, a 4-7C cycloalkyl, a 2-6C alkenyl, a 2-6C alkynyl, a 1-6C haloalkyl, etc.; R^2 is a group of the formula II (E. is C or N; X is a halogen, a 1-4C alkyl, nitro, etc.; (n) is 0-2), etc.], e.g. 2-[2-(3-chlorophenyl)-2-propenyl]-2- isopropylmalononitrile. The compound of the formula I can be produced by reacting a compound of the formula III with a compound of the formula IV (W' is a halogen) in the absence of solvent or in a solvent (e.g. acetone) in the presence or absence of a base (e.g. potassium carbonate) at -20 to +200°C. The compound has low phytotoxicity and exhibits especially strong herbicidal activity on cocksfoot grass which is the most harmful weed in the culture of paddy rice plant. It is also effective against large crab-grass, green foxtail, umbrella sedge, smooth pigweed, monochoria, bulrush, etc.

COPYRIGHT: (C)1998,JPO



(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-29966

(43)公開日 平成10年(1998)2月3日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	府内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 7 C 255/34		9357-4H	C 0 7 C 255/34	
A 0 1 N 37/34	1 0 7		A 0 1 N 37/34	1 0 7
43/20			43/20	
43/40	1 0 1		43/40	1 0 1 A
				1 0 1 E

審査請求 未請求 請求項の数 2 OL (全 18 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平8-187796

(22)出願日 平成8年(1996)7月17日

(71)出願人 000005968

三菱化学株式会社

東京都千代田区丸の内二丁目5番2号

(72)発明者 細川 明美

神奈川県横浜市青葉区鶴志田町1000番地

三菱化学株式会社横浜総合研究所内

(72)発明者 池田 修

神奈川県横浜市青葉区鶴志田町1000番地

三菱化学株式会社横浜総合研究所内

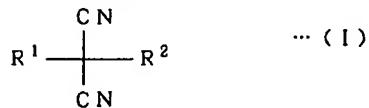
(74)代理人 弁理士 長谷川 曜司

(54)【発明の名称】 マロノニトリル誘導体およびこれを有効成分とする除草剤

(57)【要約】 (修正有)

【課題】 傷れた除草活性を有する新規マロノニトリル誘導体を提供する。

【解決手段】 一般式 I のマロノニトリル誘導体。

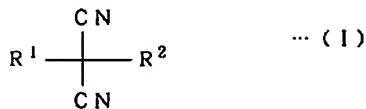


一般式 I の化合物の具体例には 2-[2-(3-クロロフェニル)-2-プロペニル]-2-i-プロピルマロノニトリルがある。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式(I)

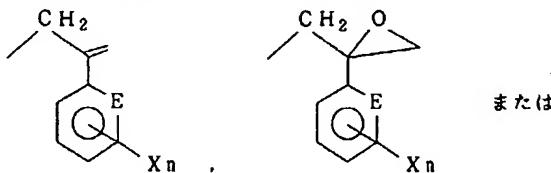
【化1】



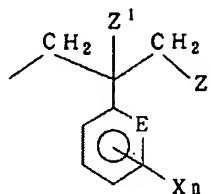
(上記式中、R¹ は水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数4～7のシクロアルキル基、炭素数2～6のアルケニル基、炭素数2～6のアルキニル基、炭素数1～6のハロアルキル基、炭素数2～6のハロアルケニル基、炭素数2～6のハロアルキニル基、炭素数2～8の

アルコキシアルキル基、炭素数3～6のアルコキシカルボニルアルキル基、炭素数2～4のシアノアルキル基、炭素数1～6のヒドロキシアルキル基、炭素数2～7のアルキルアミド基、炭素数7～9のアラルキル基、炭素数8～12のアリールカルボニルアルキル基、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいビリジル基、置換されていてもよいチアゾリル基、または-CR³R⁴-A(式中、Aは置換されていてもよいフェニル基、ビリジル基、またはチアゾリル基を示し、R³、R⁴は水素原子またはメチル基を示す。)を示し、R²は

【化2】



または



(式中Eは炭素原子または窒素原子を表わし、Xは同一または相異なり、ハロゲン原子、炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～3のハロアルキル基、ニトロ基、炭素数1～8のアルコキシ基または置換されていてもよいビンジルオキシ基またはビリジルオキシ基を示し、nは0～2の整数を示し、Z¹、Z²は同一または相異なりヒドロキシル基、ハロゲン原子、炭素数1～4のアルキルスルホニルオキシ基、または、置換されていてもよいフェニルスルホニルオキシ基を示す。)を示す)で表されるマロノニトリル誘導体。

【請求項2】 請求項1記載のマロノニトリル誘導体を有効成分とする除草剤。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は新規なマロノニトリル誘導体およびこれを有効成分とする除草剤に関する。

【0002】

【従来の技術】従来、多くの除草活性を有する化合物が提案されているが、未だある特定の作物に対する安全性と満足すべき除草活性を兼ね備えているものは多いとはいえない。また環境への影響を考慮して、使用薬量の低減可能な薬剤が望まれている。

【0003】

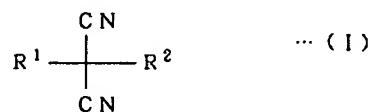
【発明が解決しようとする課題】本発明は、優れた除草活性を有する、新規なマロノニトリル誘導体を提供するものである。

【0004】

【課題を解決するための手段】すなわち、本発明の要旨は、下記一般式(I)で表されるマロノニトリル誘導体およびこれを有効成分とする除草剤に存する。

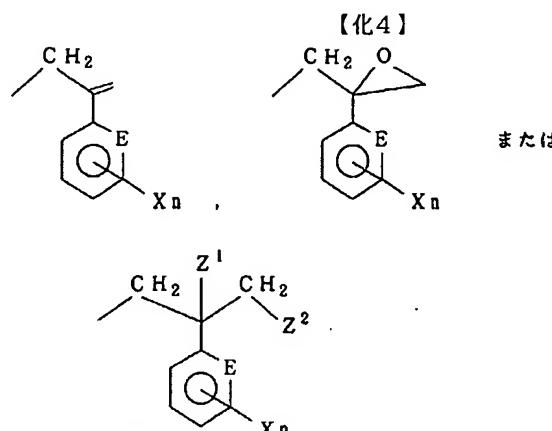
【0005】

【化3】



【0006】(上記式中、R¹は水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数4～7のシクロアルキル基、炭素数2～6のアルケニル基、炭素数2～6のアルキニル基、炭素数1～6のハロアルキル基、炭素数2～6のハロアルケニル基、炭素数2～6のハロアルキニル基、炭素数2～8のアルコキシアルキル基、炭素数3～6のアルコキシカルボニルアルキル基、炭素数2～4のシアノアルキル基、炭素数1～6のヒドロキシアルキル基、炭素数2～7のアルキルアミド基、炭素数7～9のアラルキル基、炭素数8～12のアリールカルボニルアルキル基、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいビリジル基、置換されていてもよいチアゾリル基、または-CR³R⁴-A(式中、Aは置換されていてもよいフェニル基、ビリジル基、またはチアゾリル基を示し、R³、R⁴は水素原子またはメチル基を示す。)を示し、R²は

【0007】



【0008】(式中Eは炭素原子または窒素原子を表わし、Xは同一または相異なり、ハロゲン原子、炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～3のハロアルキル基、ニトロ基、炭素数1～8のアルコキシ基または置換されていてもよいベンジルオキシ基またはピリジルオキシ基を示し、nは0～2の整数を示し、Z¹、Z²は同一または相異なりヒドロキシル基、ハロゲン原子、炭素数1～4のアルキルスルホニルオキシ基、または、置換されていてもよいフェニルスルホニルオキシ基を示す。)を示す)

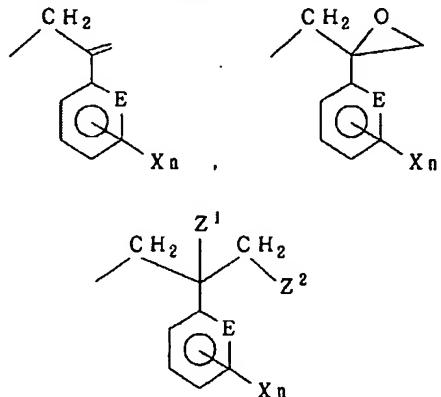
【0009】

【発明の実施の形態】本発明において除草剤として有用なマロノニトリル誘導体は前示一般式(I)で示される。一般式(I)中の好ましい置換基を以下に例示するが、本発明の要旨を越えないかぎり、以下のものに限定されない。

【0010】R¹は水素原子；メチル基、エチル基、1-メチルエチル基、n-プロピル基、1-メチルプロピル基、2-メチルプロピル基、1-メチルブチル基、2-メチルブチル基、3-メチルブチル基等の炭素数1～6の直鎖または分岐鎖のアルキル基；シクロヘキシル基、シクロヘキシル基等の炭素数4～7のシクロアルキル基；ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルビニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1-メチルアリル基、2-メチルアリル基、2-ベンゼニル基、3-ベンゼニル基、4-ベンゼニル基、1-メチル-2-ブテニル基、3-メチル-2-ブテニル基、2-メチル-3-ブテニル基、3-メチル-3-ブテニル基、1-メチル-3-ブテニル基等の炭素数2～6の直鎖または分岐鎖のアルケニル基；エチニル基、プロパルギル基、1-メチル-2-ブロピニル基、1,1-ジメチル-2-ブロピニル基等の炭素数2～6の直鎖または分岐鎖のアルキニル基；フルオロメチル基、クロロメチル基、ブロモメチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、クロロジフルオロメチル基、ブロモジフルオロメチル基、2-フルオロエチル基、2-クロロエチル基、2-ブロモエチル基、1-クロロ-2-トリクロロエチル基、2,3-ジクロロエチル基、2,3-ジフルオロエチル基、2-クロロ-2-ブロペニル基、2-フルオロ-2-ブロペニル基、3-クロロ-2-ブロペニル基、3,3-ジクロロ-2-ブロペニル基等の、炭素数2～6のハロアルケニル基；3-ヨード-2-ブロピニル基等の炭素数2～6のハロアルキニル基；メトキシメチル基、2-メトキシエチル基、3-メトキシプロピル基、4-メトキシブチル基、2-エトキシエチル基、2-ブトキシエチル基等の炭素数2～8のアルコキシアルキル基；メトキシカルボニルメチル基、エトキシカルボニルメチル基、プロポキシカルボニルメチル基、イソプロポキシカルボニルメチル基等の炭素数3～6のアルコキシカルボニルアルキル基；シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、3-シアノプロピル基等の炭素数2～4のシアノアルキル基；ヒドロキシメチル基、2-ヒドロキシエチル基、3-ヒドロキシプロピル基、4-ヒドロキシブチル基等の炭素数1～6のヒドロキシアルキル基；アセチルアミノ基、プロピオニルアミノ基、ブチリルアミノ基、イソブチリルアミノ基等の炭素数2～7のアルキルアミド基；ベンジル、フェネチル、キシリル等の炭素数7～9のアラルキル基；フェニルカルボキシエチル等の炭素数8～12のアリールカルボニルアルキル基；置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいピリジル基、置換されていてもよいチアゾリル基(フェニル基、ピリジル基、チアゾリル基の置換基としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等のハロゲン原子；メチル基、エチル基、プロピル基等の炭素数1～3のアルキル基；ヒドロキシル基；メトキシ基、エトキシ基、n-ブロボキシ基、イソブロボキシ基、n-ブトキシ基、イソブトキシ基、s-e-c-ブトキシ基、t-ブトキシ基等の炭素数1～4のアルコキシ基；ニトロ基；シアノ基があげられる。)；または-CR³R⁴A(式中、Aは置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいピリジル基、置換されていてもよいチアゾリ

ロロエチル基、2,2,2-トリフルオロエチル基等の炭素数1～6のハロアルキル基；2,3-ジクロロエチル基、2,3-ブロモエチル基、2,3-ジフルオロエチル基、2-クロロ-2-ブロペニル基、2-フルオロ-2-ブロペニル基、3-クロロ-2-ブロペニル基、3,3-ジクロロ-2-ブロペニル基等の、炭素数2～6のハロアルケニル基；3-ヨード-2-ブロピニル基等の炭素数2～6のハロアルキニル基；メトキシメチル基、2-メトキシエチル基、3-メトキシプロピル基、4-メトキシブチル基、2-エトキシエチル基、2-ブトキシエチル基等の炭素数2～8のアルコキシアルキル基；メトキシカルボニルメチル基、エトキシカルボニルメチル基、プロポキシカルボニルメチル基、イソプロポキシカルボニルメチル基等の炭素数3～6のアルコキシカルボニルアルキル基；シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、3-シアノプロピル基等の炭素数2～4のシアノアルキル基；ヒドロキシメチル基、2-ヒドロキシエチル基、3-ヒドロキシプロピル基、4-ヒドロキシブチル基等の炭素数1～6のヒドロキシアルキル基；アセチルアミノ基、プロピオニルアミノ基、ブチリルアミノ基、イソブチリルアミノ基等の炭素数2～7のアルキルアミド基；ベンジル、フェネチル、キシリル等の炭素数7～9のアラルキル基；フェニルカルボキシエチル等の炭素数8～12のアリールカルボニルアルキル基；置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいピリジル基、置換されていてもよいチアゾリル基(フェニル基、ピリジル基、チアゾリル基の置換基としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等のハロゲン原子；メチル基、エチル基、プロピル基等の炭素数1～3のアルキル基；ヒドロキシル基；メトキシ基、エトキシ基、n-ブロボキシ基、イソブロボキシ基、n-ブトキシ基、イソブトキシ基、s-e-c-ブトキシ基、t-ブトキシ基等の炭素数1～4のアルコキシ基；ニトロ基；シアノ基があげられる。)；または-CR³R⁴A(式中、Aは置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいピリジル基、置換されていてもよいチアゾリ

ル基（フェニル基、ピリジル基、チアゾリル基の置換基としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等のハロゲン原子；メチル基、エチル基、プロピル基等の炭素数1～3のアルキル基；ヒドロキシル基；メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、イソブトキシ基、sec-ブトキシ基、t-



【0012】（式中Eは炭素原子または窒素原子を表わし、Xは同一または相異なり、水素原子；フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等のハロゲン原子；メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基等の炭素数1～4のアルキル基；ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、トリクロロメチル基等の炭素数1～3のハロアルキル基；ニトロ基；メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、シクロヘキシオキシ基等の炭素数1～8のアルコキシ基；置換基として、メチル基、トリフルオロメチル基等の炭素数1～3のアルキル基、またはハロアルキル基、塩素原子、臭素原子等のハロゲン原子を有していてもよいベンジルオキシ基またはピリジルオキシ基を示し、nは0、1または2を示す。）

【0013】Z¹、Z²は同一または相異なりヒドロキシル基；塩素原子、臭素原子等のハロゲン原子；または、メチルスルホニルオキシ基、トリフルオロメタンスルホニルオキシ基、エタンスルホニルオキシ基等の炭素数1～4の置換されていてもよいアルキルスルホニル基；ベンゼンスルホニルオキシ基、o-クロロベンゼンスルホニルオキシ基、m-クロロベンゼンスルホニルオキシ基、p-クロロベンゼンスルホニルオキシ基、o-メチルベンゼンスルホニルオキシ基、m-メチルベンゼンスルホニルオキシ基、p-メチルベンゼンスルホニル基等の置換されていてもよいフェニルスルホニルオキシ基を示す。）を示す。）

【0014】次に、本発明化合物の製造法について説明する。上記一般式（I）で表される本発明化合物は、例えば、下記反応式（1）（2）（3）（4）（5）（6）（7）（8）（9）または（10）に従って合成することができる。

ブトキシ基等の炭素数1～4のアルコキシ基；ニトロ基；シアノ基があげられる。R³、R⁴は水素原子またはメチル基を示す。）を示し、R²は

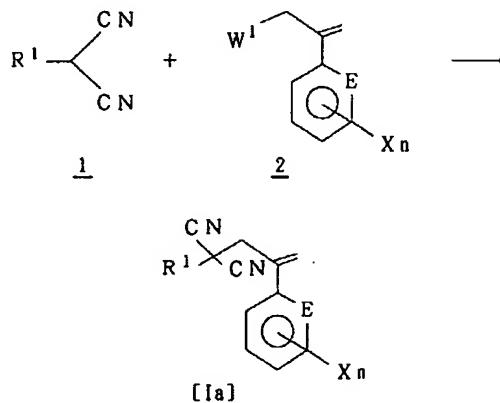
【0011】

【化5】

（1）

【0015】

【化6】



【0016】（上記反応式中、W¹は、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等のハロゲン原子を示し、R¹、E、Xおよびnは前記と同義を示す。）

上記反応は、無溶媒または溶媒中、塩基類の存在下または非存在下に行なわれる。溶媒を用いる場合、適当な溶媒としては、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類；酢酸メチル、酢酸エチル等のエステル類；アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類；N、N-ジメチルホルムアミド（DMF）、N-メチルピロリドン、ジメチルスルホキシド、アセトニトリル等の極性溶媒等があげられる。使用される塩基類としては、トリエチルアミン、ピリジン、ピコリン、N、N-ジメチルアニリン、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、ナトリウムエチラート、ナトリ

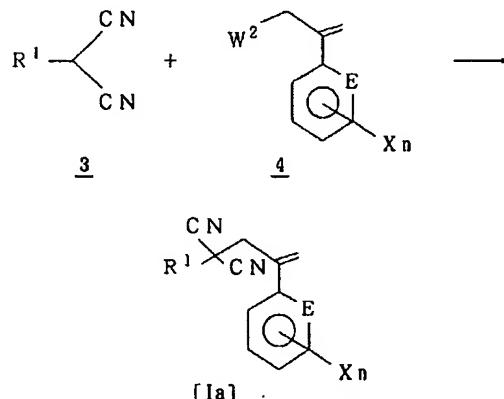
ウムメチラート、水素化ナトリウム、リチウムイソプロピルアミド、1, 8-ジアザビシクロ[5. 4. 0]-7-ウンデセン等があげられる。

【0017】本反応においては、添加物としてヨウ化カリウムを加えてもよい。反応温度は通常-20~200°C、好ましくは-5~120°Cの範囲であり、反応時間は0.5~48時間、通常1~12時間である。本反応に用いられる化合物2は特願平7-338904に記載された方法等により合成することができる。

(2)

【0018】

【化7】



【0019】(上記反応式中W²は水酸基、CH₃CO₂-CH₃-O-CO₂-または(CH₃)₃N-を示し、E、Xおよびnは前記と同義を示す。)

上記反応は、無溶媒または溶媒中、塩基類の存在下または非存在下に行なわれる。上記反応において、使用される溶媒としては、トルエン、キシレン、クメン等の芳香族炭化水素；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類；アセトニトリル、ジアルキルアニリン等の極性溶媒があげられる。

【0020】上記反応に供されるパラジウム触媒としては、PdL₄、PdR⁵L₂、PdR⁵₃、PdR⁶₂ (式中、R⁵はエチレン、スチレン等アルケンを表し、R⁶はジベンジリデンアセトン等を表し、しはトリフェニルホスフィン、トリメチルホスフィン等のリン化合物を表す。)等が挙げられる。あるいは、酢酸パラジウムとしの混合物を反応に供してもよい。また、これらのパラジウム触媒は、酸化ホウ素、塩化アルミニウム、塩化亜鉛等のルイス酸との共存下反応を行なうことも可能である。反応に供される触媒の量は、通常0.005~0.1当量、好ましくは0.005~0.05当量である。

【0021】使用される塩基類としては、トリエチルアミン、ピリジン、ピコリン、N, N-ジメチルアミン、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、ナトリウムエチラート、ナトリウムメチラート、水素化ナトリウム、リチウムジイソプロピルアミド、1, 8-ジアザビシクロ[5. 4. 0]-7-ウンデセン等があげられる。

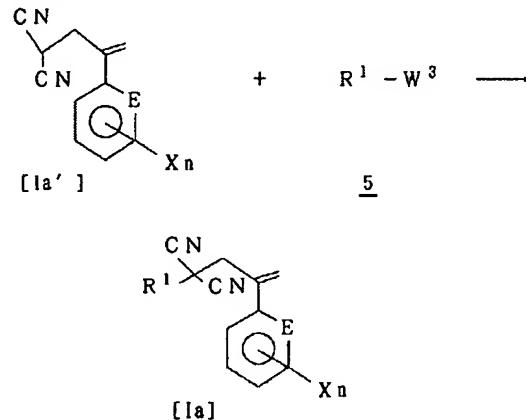
ウム、ナトリウムエチラート、ナトリウムメチラート等があげられる。

【0022】本反応においては、添加物としてヨウ化カリウムを加えてもよい。反応温度は通常0~200°C、好ましくは20~150°Cの範囲で行なうのが望ましい。反応時間は0.5~48時間、通常1~12時間である。

(3)

【0023】

【化8】



【0024】(上記反応式中、R¹、E、Xおよびnは前記と同義を示す。W³は塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子またはスルホニルクロライドを表わす。但し、R¹は水素原子ではない。)

上記縮合反応は、無溶媒または溶媒中、塩基類の存在下または非存在下に行なわれる。溶媒を用いる場合、適当な溶媒としては、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類；N, N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、ジメチルスルホキシド、アセトニトリル等の極性溶媒等があげられる。

【0025】使用される塩基類としては、トリエチルアミン、ピリジン、ピコリン、N, N-ジメチルアミン、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、ナトリウムエチラート、ナトリウムメチラート、水素化ナトリウム、リチウムジイソプロピルアミド、1, 8-ジアザビシクロ[5. 4. 0]-7-ウンデセン等があげられる。

【0026】反応温度は通常-20~200°C、好ましくは-5~120°Cの範囲であり、反応時間は0.5~48時間、通常1~12時間である。

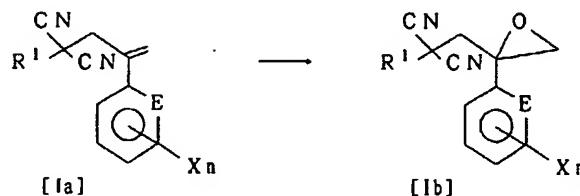
(4)

【0027】

【化9】

(6)

特開平10-29966



【0028】(上記反応式中、R¹、Xおよびnは前記と同義を示す。)

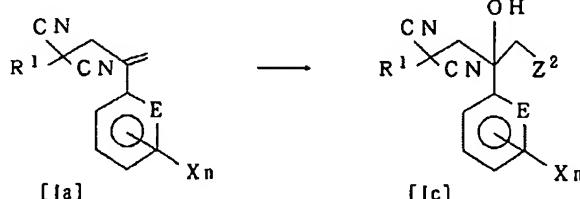
上記酸化反応は、クロロホルム、ジクロロメタン等のハロゲン化水素類；ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類；ヘキサン、シクロヘキサン等の炭化水素類；メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール等のアルコール類；酢酸；水等の溶媒中、m-クロロ過安息香酸、過酢酸等の過酸類、過酸化水素、t-ブチルハイド

ロバーオキシドまたは次亜ハロゲン酸アルカリ金属塩等の酸化剤存在下に行われる。反応温度は通常-20~200°C、好ましくは0~80°Cの範囲であり、反応時間は通常1~24時間、好ましくは1~12時間である。

(5)

【0029】

【化10】



【0030】(上記反応式中、R¹、Xおよびnは前記と同義を示し、Z²はハロゲン原子を示す。)

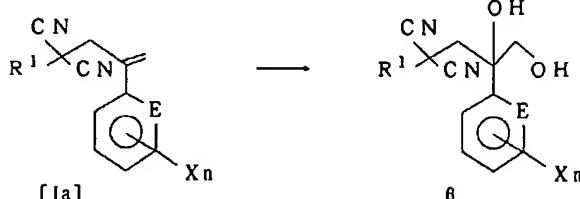
上記反応は、水または水性溶媒中、次亜ハロゲン酸アルカリ金属塩類、亜ハロゲン酸アルカリ金属塩類、N-ハロゲノコハク酸イミド類または塩素、臭素、ヨウ素等のハロゲン含有試薬を、酢酸等の脂肪酸類または鉱酸類等の酸および/または酢酸水銀、酸化水銀等の金属化合物

存在下または非存在下に作用させることによって行なわれる。反応温度は通常-30~100°C、好ましくは-10~60°Cの範囲であり、反応時間は通常0.1~24時間、好ましくは0.5~6時間である。

(6)

【0031】

【化11】



【0032】(上記反応式中、R¹、Xおよびnは前記と同義を示す。)

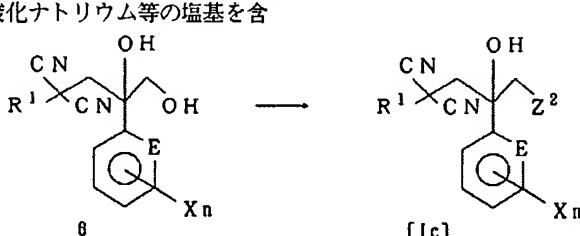
上記反応は、例えば過酸化水素および蟻酸または酢酸等の脂肪酸類の混合物を通常0~120°C、好ましくは20~80°Cにて、0.5~24時間、好ましくは1~12時間反応させ、次いで水酸化ナトリウム等の塩基を含

むアルカリ水溶液で通常0~100°C、好ましくは20~80°Cにて処理することにより行なわれる。

(7)

【0033】

【化12】



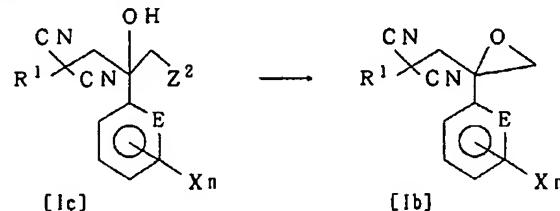
【0034】(上記反応式中、R¹、Xおよびnは前記と同義を示し、Z²は炭素数1~4のアルキルスルホニ

ルオキシ基、またはハロゲン原子で置換されていてもよいフェニルスルホニルオキシ基を示す。)

上記のスルホニル化反応は無溶媒または溶媒中、塩基類の存在下または非存在下スルホニルクロライドまたは無水スルホン酸を作用させることにより行なわれる。

【0035】溶媒を用いる場合、適当な溶媒としては、メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール等のアルコール類；アセトン、エチルケトン等のケトン類；ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類；N, N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、ジメチルスルホキシド、アセトニトリル等の極性溶媒；酢酸；水等があげられる。

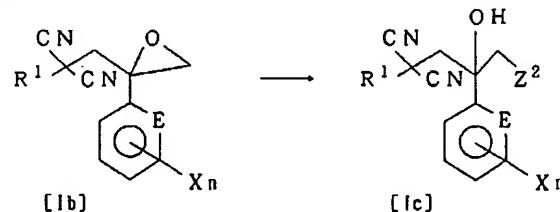
【0036】使用される塩基類としては、トリエチルア



【0039】(上記反応式中、R¹, X, n および Z²は前記と同義を示す。)

上記の環化反応は溶媒中、塩基類の存在下で行なわれる。適当な溶媒としては、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類；N, N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、ジメチルスルホキシド、アセトニトリル等の極性溶媒；酢酸エチル等のエステル類；クロロホルム、ジクロロメタン等のハロゲン化炭化水素等があげられる。

【0040】使用される塩基類としては、トリエチルア



【0043】(上記反応式中、R¹, X, n および Z²は前記と同義を示す。)

上記の開環反応は溶媒中、塩基類の存在下または非存在下、ハロゲン化水素類またはスルホン酸類を作用させることにより行なわれる。適当な溶媒としては、メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール等のアルコール類；ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類；N, N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、ジメチルスルホキシド、アセトニトリル等の極性溶媒；クロロホルム、ジクロロメタン等のハロゲン化炭化水素；酢酸エチル等のエステル類；水等があげられる。

ミン、ピリジン、ピコリン、N, N-ジメチルアニリン、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、ナトリウムエチラート、ナトリウムメチラート、水素化ナトリウム等があげられる。

【0037】反応温度は通常-10~120°C、好ましくは0~80°Cの範囲であり、反応時間は通常1~12時間である。

(8)

【0038】

【化13】

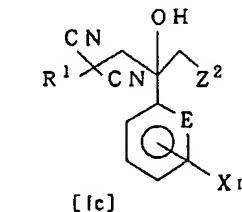
ミン、ピリジン、ピコリン、N, N-ジメチルアニリン、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、ナトリウムエチラート、ナトリウムメチラート、水素化ナトリウム等があげられる。

【0041】反応温度は通常-20~100°C、好ましくは-5~60°Cの範囲であり、反応時間は通常1~12時間である。

(9)

【0042】

【化14】

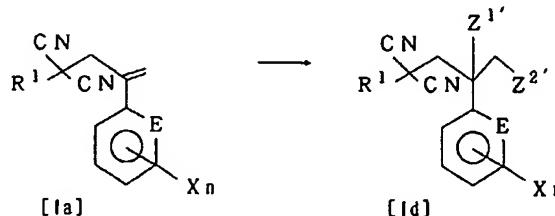


【0044】使用される塩基類としては、トリエチルアミン、ピリジン、ピコリン、N, N-ジメチルアニリン、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、ナトリウムエチラート、ナトリウムメチラート、水素化ナトリウム等があげられる。

【0045】反応温度は通常-120~150°C、好ましくは-60~80°Cの範囲であり、反応時間は通常0.1~48時間、好ましくは0.5~12時間である。(10)

【0046】

【化15】



【0047】(上記反応式中、 R^1 、 X 、および n は前記と同義を示す。 Z^1' 、 Z^2' はハロゲン原子を示す。)

上記の反応は溶媒中、塩素、臭素、またはヨウ素等のハロゲンを作用させることにより行なわれる。適當な溶媒としては、メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール等のアルコール類；ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類；N、N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、ジメチルスルホキシド、アセトニトリル等の極性溶媒；クロロホルム、ジクロロメタン等のハロゲン化炭化水素；酢酸エチル等のエステル類；水等があげられる。反応温度は通常0～150°C、好ましくは0～80°Cの範囲であり、反応時間は通常0.1～24時間、好ましくは0.5～12時間である。

【0048】かくして得られる本発明化合物には光学異性体が存在し、通常、ラセミ体として得られるが不斉合成等の既知の方法で各対掌体を得ることも可能であり、本発明化合物は、ラセミ体でも各異性体単独でも除草剤として使用できる。一般式（I）で示される本発明化合物を除草剤として適用するには原体そのものを施用してもよいし、適當な担体あるいは界面活性剤等を用いて、常法に従って水和剤、粒剤、乳剤、フロアブル剤等の形態をとることも可能である。担体及び界面活性剤としては、例えば、特開昭60-25986号公報に記載のものが使用できる。更に本発明化合物を含む除草剤は、同一分野に用いる他の農薬、例えば殺虫剤、殺菌剤、除草剤、生長調節剤または肥料等と混合施用することも可能である。

【0049】本発明除草剤の施用量は、使用される化合物の種類、対象雑草、処理時期、処理方法または土壤の性質の状況によって異なるが、通常有効成分として1アル当り0.2~40グラム、好ましくは1~20グラムの範囲が適当である。

(0050)

【作用】本発明化合物は修飾官能基の種類や置換位置によって生理活性に若干の変動が見られるが、いずれも水田での水稻栽培上最も有害雑草であるノビエに対して発生前から生育の進んだ個体に極めて強力な殺草活性を有し、かつ、水稻に対して薬害が少い。

【0051】また本発明化合物は湛水土壌処理活性のみならず、畑地土壌処理活性も有しております、メヒシバ、ノ

ビエ、エノコログサ等の一年生雑草に対して強力な殺草活性を有し、かつ、ダイズ、ワタ、トウモロコシ、コムギ、オオムギ、ビート等の作物に対して著しく薬害が少い。本発明化合物の殺草活性はノビエ、メヒシバ、エノコログサ等のイネ科雑草に対して最も高く、さらにカヤツリグサ、タマガヤツリ、ホタルイ、マツバライ等のカヤツリグサ科雑草およびシロザ、アオビユ、イヌタデ、キカシグサ、コナギ等の一年生広葉雑草に対しても有効である。

【0052】また、本発明化合物は生育の進んだ一年生広葉雑草および多年生雑草に対する殺草活性はやや低いが、これらの雑草に有効な除草剤を混合使用することによって殺草スペクトラムの幅を著しく拡大することができる、かつ、効果をより安定化させることもできる。この場合に好適に混合することができる除草剤としては特開平2-304043号公報P22~32に記載のもののがあげられ、それらを複数混合して使用することも可能である。

【0053】

【実施例】以下に実施例をあげて本発明を更に詳細に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の実施例により限定されるものではない。

案施例 1

2-[2-(3-クロロフェニル)-2-プロペニル]-2-i-プロピルマロノニトリルの合成
 2-[2-(3-クロロフェニル)-2-プロペニル]マロノニトリル 1.2 g, 2-ヨウ化プロパン 1.87 g, 炭酸カリウム 2.3 g, ヨウ化カリ触媒量、アセトンの混合液を、3時間リフラックスした。放冷したのち不溶物を汎別、濃縮し、得られた残渣をカラムクロマトグラフィー(展開系:ヘキサン/酢エチ=6/1)にて精製し、2-[2-(3-クロロフェニル)-2-プロペニル]-2-i-プロピルマロノニトリル 1.19 gを得た。

【0054】実施例2

2-(2-フェニル-2-プロペニル)-2-エチルマロノニトリルの合成
 3-クロロ-2-フェニル-1-プロペン2gにアセトン10ml、炭酸カリウム4.14g(2eq)、K1触媒量及びcf. J. Chem Soc Perk T 1 (10), 2589-2592 (1991)に記載された方法により合成した2-エチルマロノニトリル1.1gを加え、2時間リフラックスした。室温まで放冷し

た後、不溶物を沪別し、濃縮、得られた残渣をカラムクロマトグラフィー（展開系；ヘキサン/酢エチ=6/1）にて精製し、2-(2-フェニル-2-プロペニル)-2-エチルマロノニトリル1.82gを得た。上記した方法と同様にして、下記表-1の化合物を合成した。合成した化合物の構造をIRスペクトルおよびNMRスペクトルによって確認した。

【0055】実施例3

2-[2-(3-クロロフェニル)-2-エポキシプロピル]-2-(メキシメチル)マロノニトリルの合成

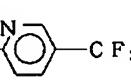
2-[2-(3-クロロフェニル)-2-プロペニル]-2-(メキシメチル)マロノニトリル0.92gをクロロホルム10mlに溶解し、40%過酢酸5.4m

l、酢酸ナトリウム3水和物0.48gを加え、3時間リフラックスした。放冷した後、水洗、重曹水洗を2回行ない、過酸化物が残存しないことをヨウ化カリ濃紺紙にて確認した後濃縮し、得られた残渣をカラムクロマトグラフィー（展開系；ヘキサン/酢エチ=2/1）にて精製し、2-[2-(3-クロロフェニル)-2,3-エポキシプロピル]-2-(メキシメチル)マロノニトリル0.45gを得た。上記した方法と同様にして、下記表-2の化合物を合成した。合成した化合物の構造をIRスペクトルおよびNMRスペクトルによって確認した。

【0056】

【表1】

表-1

化合物 No.	R ¹	E	Xn
1	CH ₃	CH	3-C1
2	C ₂ H ₅	CH	3-C1
3	iC ₃ H ₇	CH	3-C1
4	cyc-C ₆ H ₁₁	CH	3-C1
5	CH ₃ OCH ₂	CH	3-C1
6	PhCH ₂	CH	3-C1
7	C ₂ H ₅ OOCCH ₂	CH	3-C1
8	CH ₃ CONH	CH	3-C1
9	4-C1-3-Pyridyl	CH	3-C1
10	PhCOCH ₂	CH	3-C1
11	CH ₃ COCH ₂	CH	3-C1
12	t-C ₄ H ₉	CH	3-C1
13	Allyl	CH	3-C1
14	C ₂ H ₅	CH	-O- 
15	C ₂ H ₅	CH	—

【0057】

【表2】

(10)

特開平10-29966

表-1 (つづき)

化合物 No.	R ¹	E	Xn
16	C ₂ H ₅	CH	3, 5-diCl
17	C ₂ H ₅	CH	3-CH ₃
18	C ₂ H ₅	CH	3-OCH ₂ Ph
19	C ₂ H ₅	CH	2-Cl
20	C ₂ H ₅	CH	3-F
21	C ₂ H ₅	CH	3-Br
22	C ₂ H ₅	CH	3-CF ₃
23	C ₂ H ₅	CH	3-OCH ₃
24	C ₂ H ₅	CH	3-O-i-C ₃ H ₇
25	C ₂ H ₅	CH	4-Cl
26	C ₂ H ₅	CH	3, 5-di-CH ₃
27	C ₂ H ₅	N	3-Cl
28	CH ₃	CH	3-CH ₃
29	CH ₃	CH	3, 5-di-CH ₃
30	i-C ₃ H ₇	CH	3-CH ₃
31	i-C ₃ H ₇	CH	3, 5-di-CH ₃
32	Ph	CH	3-CH ₃
33	Ph	CH	3, 5-di-CH ₃
34	CH ₃ OCH ₂	CH	3-CH ₃
35	CH ₃ OCH ₂	CH	3, 5-di-CH ₃
36	H	CH	3-Cl
37	H	CH	3-CH ₃
38	H	CH	3, 5-di-CH ₃

【0058】

【表3】

(11)

特開平10-29966

表-2

化合物 No.	R ¹	E	Xn	
			C	H
38	CH ₃	CH	3-C1	
39	C ₂ H ₅	CH	3-C1	
40	iC ₃ H ₇	CH	3-C1	
41	cyc-C ₆ H ₁₁	CH	3-C1	
42	CH ₃ OCH ₂	CH	3-C1	
43	PhCH ₂	CH	3-C1	
44	C ₂ H ₅ OOCCH ₂	CH	3-C1	
45	CH ₃ CONH	CH	3-C1	
46	4-C1-3-Pyridyl	CH	3-C1	
47	PhCOCH ₂	CH	3-C1	
48	CH ₃ COCH ₂	CH	3-C1	
49	t-C ₄ H ₉	CH	3-C1	
50	Aliyl	CH	3-C1	
51	C ₂ H ₅	CH	-O-N(CF ₃) ₂	
52	C ₂ H ₅	CH	—	

【0059】

【表4】

(12)

特開平10-29966

表-2(つづき)

化合物 No.	R ¹	E	X ₀
5 3	C ₂ H ₅	CH	3, 5-diCl
5 4	C ₂ H ₅	CH	3-CH ₃
5 5	C ₂ H ₅	CH	3-OCH ₂ Ph
5 6	C ₂ H ₅	CH	2-Cl
5 7	C ₂ H ₅	CH	3-F
5 8	C ₂ H ₅	CH	3-Br
5 9	C ₂ H ₅	CH	3-CF ₃
6 0	C ₂ H ₅	CH	3-OCH ₃
6 1	C ₂ H ₅	CH	3-O-i-C ₃ H ₇
6 2	C ₂ H ₅	CH	4-Cl
6 3	C ₂ H ₅	CH	3, 5-di-CH ₃
6 4	C ₂ H ₅	N	3-Cl
6 5	CH ₃	CH	3-CH ₃
6 6	CH ₃	CH	3, 5-di-CH ₃
6 7	CH ₃	CH	3-CH ₃
6 8	i-C ₃ H ₇	CH	3, 5-di-CH ₃
6 9	Ph	CH	3-CH ₃
7 0	Ph	CH	3, 5-di-CH ₃
7 1	CH ₃ COCH ₂	CH	3-CH ₃
7 2	CH ₃ OCH ₂	CH	3, 5-di-CH ₃

【0060】(表-1, 表-2中Phはフェニル基を表わす)

上記の表1及び表2に記載された化合物のNMRスペクトル(300MHz)及びIRスペクトルデーターを以

下の表-3及び表-4に示す。表中の化合物番号は上記の表-1及び表-2の番号に対応している。

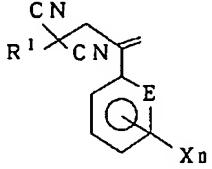
【0061】

【表5】

(1 3)

特開平 10-29966

表 - 3

化合物 No.	^1H - NMR (CDCl_3 , δ ppm) or IR (cm^{-1})	
1	2.64(2H, d), 3.09(2H, s), 5.35(1H, d), 5.42(1H, d), 5.52(1H, s), 5.62(1H, s), 7.3(3H, m), 7.38(1H, d)	
2	1.26(3H, t), 1.94(2H, dd), 3.10(2H, s), 5.52(1H, s), 5.62(1H, s), 7.2-7.35(3H, m), 7.38(1H, m)	
4	1.5-1.7(4H, m), 1.7-1.9(2H, m), 1.9-3.0(2H, m), 2.33(1H, q), 3.05(2H, s), 5.52(1H, s), 5.60(1H, s), 7.23-7.38(3H, m), 7.38(1H, m)	
5	3.18(2H, s), 3.36(3H, s), 3.60(2H, s), 5.52(1H, s), 5.64(1H, s), 7.29(3H, m), 7.40(1H, d)	
6	3.13(2H, s), 3.16(2H, d), 5.54(1H, s), 5.64(1H, s), 7.25-7.40(4H, m)	
7	1.26(3H, m), 2.86(2H, s), 2.31(2H, s), 4.23(2H, q), 5.55(1H, s), 5.65(1H, s), 7.26-7.36(4H, m), 7.38(1H, d)	
8	2.32(3H, s), 4.38(2H, d), 4.85(1H, br), 5.39(1H, s), 5.53(1H, s), 7.3(3H, m), 7.39(1H, s)	
9	3.13(2H, s), 3.19(2H, s), 5.56(1H, s), 5.68(1H, s), 7.2-7.4(6H, m), 7.69(1H, dd), 8.37(1H, d)	

【0062】

【表6】

表-3(つづき)

化合物 No.	$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , δ ppm) or IR (cm^{-1})
1 0	3.42(2H, s), 3.51(2H, s), 5.57(1H, s), 5.65(1H, s), 7.2(2H, m), 7.36(1H, dd), 7.42-7.46(3H, m), 7.61(1H, dd), 7.42(2H, d)
1 2	1.29(9H, s), 2.99(2H, s), 5.55(1H, s), 5.62(1H, s), 7.30(3H, m), 7.40(1H, d)
1 3	2.64(2H, d), 3.09(2H, s), 5.35(1H, d), 5.42(1H, d), 5.52(1H, s), 5.62(1H, s), 7.3(3H, m), 7.38(1H, d)
1 5	1.24(3H, t), 1.92(2H, dd), 3.14(2H, s), 5.47(1H, s), 5.59(1H, s), 7.3-7.4(5H, m)
1 6	1.28(3H, t), 1.96(2H, q), 3.06(2H, s), 5.57(1H, s), 5.65(1H, s), 7.27(2H, d), 7.35(1H, d)
1 7	1.24(3H, t), 1.90(2H, q), 2.38(3H, s), 3.13(2H, s), 5.44(1H, s), 5.57(1H, s), 7.13-7.30(4H, m)
1 8	1.21(3H, t), 1.86(2H, dd), 3.09(2H, s), 5.09(2H, s), 5.46(1H, s), 5.59(1H, s), 6.92-7.00(3H, m), 7.03-7.45(6H, m)
2 4	1.23(3H, t), 1.35(6H, d), 3.10(2H, s), 5.45(1H, s), 5.58(1H, s), 6.8-6.95(3H, m), 7.26(1H, t)
2 9	2910, 2850, 2240, 1590, 1450, 1370
3 0	2960, 2230, 1730, 1460
3 1	2960, 2910, 2240, 1735, 1595, 1460
3 2	3025, 2920, 2240, 1730, 1590, 1490, 1450
3 3	2910, 2840, 2240, 1590, 1485, 1440

【0063】

【表7】

(15)

特開平10-29966

表-4

化合物 No.	$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , δ ppm) or ^1R (cm^{-1})	Chemical Structure	
		R^1	X_{II}
3 8	1.82(3H, s), 2.43(1H, d), 2.79(1H, d), 2.88(1H, d), 3.15(1H, d), 7.3(3H, s), 7.41(1H, dd)		
3 9	1.23(3H, t), 2.02(2H, dd), 2.43(1H, d), 2.73(1H, d), 2.90(1H, d), 3.15(1H, d), 7.3-7.4(3H, m), 7.49(1H, dd)		
4 0	1.20(6H, t), 2.22(1H, q), 2.48(1H, d), 2.58(1H, d), 2.95(1H, d), 3.17(1H, d), 7.3-7.42(3H, m), 7.49(1H, m)		
4 1	1.26(3H, t), 1.45-1.7(4H, m), 1.7-1.9(2H, m), 1.9-2.1(2H, m), 2.37(1H, t), 2.46(1H, d), 2.63(1H, d), 2.93(1H, d), 3.17(1H, d), 7.34-7.40(3H, m), 7.48(1H, d)		
4 2	2.48(1H, d), 2.85(1H, d), 2.89(1H, d), 3.15(1H, d), 3.44(3H, s), 3.69(2H, d), 7.36(3H, m), 7.47(1H, dd)		
4 3	2.50(1H, d), 2.72(1H, d), 2.91(1H, d), 3.16(1H, d), 3.24(2H, s), 7.25-7.45(8H, m), 7.47(1H, d)		
4 4	1.28(3H, m), 2.62(1H, d), 2.86(1H, d), 3.02(2H, s), 3.05(1H, d), 3.13(1H, d), 4.23(2H, q), 7.36(3H, m), 7.46(1H, dd)		
4 6	2.48(1H, d), 2.89(1H, d), 2.92(1H, d), 3.27(1H, d), 3.24(2H, s), 7.37(4H, m), 7.49(1H, s), 7.70(1H, dd), 8.37(1H, dd)		

【0064】

【表8】

表-4(つづき)

化合物 No.	$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , δ ppm) or 1R (cm^{-1})
4 7	2.69(1H, d), 2.83(1H, d), 3.15(1H, d), 3.21(1H, d), 3.72(2H, dd), 7.27(2H, m), 7.38(1H, m), 7.43-7.50(3H, m), 7.63(1H, m), 7.85(2H, d)
4 8	2.19(3H, s), 2.76(1H, d), 2.80(1H, d), 3.08(2H, d), 3.15(1H, d), 3.24(1H, d), 7.35(3H, m), 7.43(1H, dd)
5 2	1.24(3H, t), 2.00(2H, dd), 2.49(1H, d), 2.69(1H, d), 2.95(1H, d), 3.14(1H, d), 7.39(3H, m), 7.48(2H, m)
5 3	1.26(3H, t), 2.03(2H, q), 2.41(1H, d), 2.75(1H, d), 2.87(1H, d), 3.17(1H, d), 7.37(3H, s)
5 4	1.24(3H, t), 2.00(2H, q), 2.38(3H, s), 2.49(1H, d), 2.69(1H, d), 2.94(1H, d), 3.14(1H, d), 7.19(1H, m), 7.24-7.30(3H, m)
5 5	1.22(3H, t), 1.97(2H, dd), 2.44(1H, d), 2.69(1H, d), 2.92(1H, d), 3.14(1H, d), 5.09(2H, s), 6.98(1H, dd), 7.09(2H, m), 7.25-7.43(8H, m)
5 6	1.24(3H, t), 2.02(2H, q), 2.35(1H, d), 2.92(1H, d), 2.98(1H, d), 3.18(1H, d), 7.15-7.55(3H, m), 7.6-7.75(1H, m)
5 7	1.26(3H, t), 2.02(2H, q), 2.43(1H, d), 2.75(1H, d), 2.40(1H, d), 3.16(1H, d), 7.0-7.45(4H, m)
5 8	1.26(3H, t), 2.01(2H, q), 2.42(1H, d), 2.74(1H, d), 2.48(1H, d), 3.15(1H, d), 7.30(1H, d), 7.35-7.55(2H, m), 7.65(1H, d)
5 9	1.26(3H, t), 2.03(2H, q), 2.45(1H, d), 2.80(1H, d), 2.90(1H, d), 3.20(1H, d), 7.5-7.76(4H, m)

【0065】

【表9】
表-4(つづき)

化合物 No.	$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , δ ppm) or 1R (cm^{-1})
6 0	1.24(3H, t), 2.00(2H, q), 2.46(1H, d), 2.72(1H, d), 2.91(1H, d), 3.13(1H, d), 3.80(3H, s), 6.40(1H, dd), 7.02(1H, dd), 7.05(1H, dd), 7.32(dd)
6 1	1.26(3H, t), 2.02(2H, q), 2.42(1H, d), 2.71(1H, d), 2.38(1H, d), 3.14(1H, d), 7.39(4H, dd)
6 5	2990, 2910, 2250, 1725, 1450, 1260, 1240
6 6	2910, 2840, 2240, 1600, 1450, 1370, 1220
6 7	2960, 2925, 2240, 1730, 1605, 1590, 1460, 1390, 1370
6 8	2960, 2910, 2240, 1740, 1600, 1460, 1375
6 9	3150, 2950, 2920, 2240, 1730, 1600, 1585, 1482, 1445, 1370
7 0	2900, 2850, 2240, 1600, 1490, 1450, 1370

【0066】次に本発明化合物の製剤例を示す。なお、以下に「部」、「%」とあるのは、それぞれ「重量

部」、「重量%」を意味する。
製剤例1：水和剤

本発明化合物40部、カーブレックス#80（塩野義製薬社、商標名）20部、N,Nカオリンクレー（土屋カオリン社、商標名）35部、高級アルコール硫酸エステル系界面活性剤ソルボール8070（東邦化学社、商標名）5部を配合し、均一に混合粉碎して、有効成分40%を含有する水和剤を得た。

【0067】製剤例2：粒剤

本発明化合物1部、クレー（日本タルク社製）45部、ベントナイト（豊順洋行社製）52部、サクシネット系界面活性剤エヤロールCT-1（東邦化学社、商標名）2部を配合し、混合粉碎したのち水を20部加えて捏和した。更に、これを押し出し造粒機を用いて直径0.6mmの穴から押し出し、60°Cで2時間乾燥した後、1～2mmの長さに切断して、有効成分1%を含有する粒剤を得た。

【0068】製剤例3：乳剤

本発明化合物30部をキシレン30部およびジメチルホルムアミド25部からなる混合溶媒に溶解させ、これにポリオキシエチレン系界面活性剤ソルボール3005X（東邦化学社、商標名）15部を加えて、有効成分30%を含有する乳剤を得た。

【0069】製剤例4：フロアブル剤

$$\left(1 - \frac{\text{処理区における雑草の地上部生体重}}{\text{無処理区における雑草の地上部生体重}} \right) \times 100 = Y (\%)$$

【0072】を求め、下記の基準による除草効果係数で表した。

【0073】

【表10】

除草効果係数	Y (%)
0	0～5
1	6～30
2	31～50
3	51～70
4	71～90
5	91～100

【0074】試験例2 畑地土壤処理試験

面積200cm²の樹脂製バットに畑地火山灰土壤を充填し、この土壤表面にメヒシバ、エノコログサ、シロザの各雑草種子を混合した土壤を均一に入れ、製剤例1により得た本発明化合物を有効成分とする水和剤を水で希釈調整し、有効成分量の処理薬量が1アール当り10gとなるように所定量を小型動力加圧噴霧器で土壤表面に均一に噴霧処理を行った。その後、温室内で栽培管理を続け、薬剤処理28日目に除草効果について調査を行った。その結果を表-6に示した。（表-6の化合物No.は表-1～表-2の化合物No.に対応する。）なお、除草効果の評価は、試験例1の基準と同様に表した。

【0075】

本発明化合物30部を、あらかじめ混合しておいたエチレングリコール8部、ソルボールAC3032（東邦化学社、商標名）5部、キサンタンガム0.1部、水56.9部に良く混合分散させた。次にこのスラリー状混合物をダイノーミル（シンマルエンタープライゼス社）の温式粉碎して、有効成分30%を含有する安定なフロアブル剤を得た。

【0070】試験例1 湿水土壤処理試験

面積200cm²の樹脂製ボットに水田沖積埴土を充填し、施肥後、適量の水を加えて代掻きを行い、土壤表面から0.5cm層内にノビエ、コナギ、ホタルイの各雑草種子を混入した。その後入水を行い、3.5cmの湛水深を保った。雑草播種5日目に製剤例4に従って調製した本発明化合物を有効成分とするフロアブル剤を水で希釈調整し、有効成分量の処理薬量が1アール当り10gとなるように所定量を湛水面に滴下処理を行った。その後、温室内で栽培管理を続け、薬剤処理後28日目に除草効果について調査を行った。その結果を表-5に示した。（表-5の化合物No.は表-1～表-2の化合物No.に対応する。）なお、除草効果の評価は、

【0071】

【数1】

【表11】

表-5

供試化合物 No.	有効成分 g/a	除草効果		
		ノビエ	コナギ	ホタルイ
3	10	5	3	4
38	10	5	5	5
39	10	5	4	4
40	10	5	5	5
42	10	5	5	5
43	10	5	5	5
50	10	5	4	4
53	10	5	4	5
59	10	5	4	5
62	10	5	4	4
60	10	5	5	5
63	10	5	5	5
57	10	5	5	5
58	10	5	5	5

【0076】

【表12】

表-6

供試化合物 No.	有効成分 g/a	除草効果		
		メヒシバ	エノコログサ	シロザ
38	10	5	5	5
39	10	5	5	5
40	10	5	5	4
42	10	5	4	3
52	10	5	4	3
53	10	5	4	3
54	10	5	5	5
50	10	5	4	5
60	10	5	5	3
63	10	5	5	4

【0077】

ており、除草剤の有効成分として極めて有用である。

【発明の効果】本発明の化合物は優れた除草活性を有し

フロントページの続き

(51) Int. Cl. ⁶	識別記号	府内整理番号	F I	技術表示箇所
A 01 N 43/40	101		A 01 N 43/40	101 G
C 07 C 255/35		9357-4H	C 07 C 255/35	
255/37		9357-4H	255/37	
255/40		9357-4H	255/40	
255/41		9357-4H	255/41	
255/44		9357-4H	255/44	
C 07 D 213/61			C 07 D 213/61	
213/64			213/64	
277/30			277/30	
303/46			303/46	
405/04	213		405/04	213
405/12	213		405/12	213